

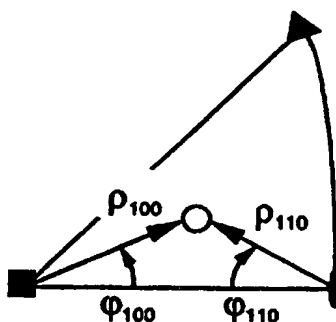


**PCT**  
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro  
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> :</b> <b>G01N 23/00</b>	<b>A2</b>	<b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 98/08081</b> <b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> 26. Februar 1998 (26.02.98)
<b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP97/04112 <b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 29. Juli 1997 (29.07.97)  <b>(30) Prioritätsdaten:</b> 196 31 367.8      2. August 1996 (02.08.96)      DE  <b>(71)(72) Anmelder und Erfinder:</b> DIEHL, Roland [DE/DE]; Burgstrasse 4, D-79258 Hartheim (DE). HERRES, Nikolaus [DE/DE]; Fichtenstrasse 26, D-79194 Gundelfingen (DE).		<b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> IL, JP, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  <b>Veröffentlicht</b> <i>Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.</i>

**(54) Title:** METHOD OF IDENTIFYING CUT DIAMONDS

**(54) Bezeichnung:** VERFAHREN ZUM IDENTIFIZIEREN VON GESCHLIFFENEN DIAMANTEN



**(57) Abstract**

The invention concerns a method used for radiographically identifying diamonds, in particular for determining whether a completely cut diamond is identical to or different from a known completely cut diamond. To that end, the position of the table facet of the diamond relative to the diamond lattice is determined by means of two crystallographic polar angles and then at least one radiographical transmission recording of the internal defects of the diamond is realized by monochromatic X-radiation at the Bragg angle. The identity of the diamond can be checked by comparing the polar angles determined and the X-ray topograms with polar angles and X-ray topograms of known decorative diamonds obtained by the same procedure.

### (57) Zusammenfassung

Ein Verfahren dient zur röntgenographischen Identifizierung von Diamanten, insbesondere zur Bestimmung, ob ein vollständig geschliffener Diamant identisch mit oder verschieden von einem bekannten vollständig geschliffenen Diamanten ist. Dabei wird die Lage der Tafelfacette des Diamanten relativ zum Diamantgitter durch zwei kristallographische Polwinkel ermittelt und anschließend wird wenigstens eine röntgentopographische Transmissionsaufnahme der internen Defekte des Diamanten mittels monochromatischer Röntgenstrahlung beim Bragg'schen Winkel angefertigt. Durch Vergleich der ermittelten Polwinkel und Röntgentopogramme mit nach gleicher Prozedur erhaltenen Polwinkeln und Röntgentopogrammen bekannter Schmuckdiamanten kann dann die Identität überprüft werden.

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Letland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauritanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

### **Verfahren zum Identifizieren von geschliffenen Diamanten**

Die Erfindung bezieht sich auf ein Verfahren zur röntgenographischen Identifizierung von geschliffenen Diamanten, insbesondere zur Bestimmung, ob ein vollständig geschliffener Diamant identisch mit oder verschieden von einem bekannten vollständig geschliffenen Diamanten ist.

Zu Schmuckzwecken geschliffene Diamanten (Brillianten, Navette, Tropfen, Triangel, Trapeze, Baguettes, Smaragdschliffe, etc.) stellen in der Regel einen hohen Geldwert dar. Ihr Wert bestimmt sich nach Gewicht, Farbe, Reinheit und Schliffqualität. Diese vier Wertmerkmale eines geschliffenen Diamanten werden durch eine fachmännische, nach international festgelegten Regeln durchzuführende Diamantgraduierung bestimmt. Bei geschliffenen Schmuckdiamanten höheren Wertes, deren Gewicht gewöhnlich oberhalb von 0,5 Karat liegt, wird das Graduierungsergebnis in Form eines Zertifikats schriftlich und nachvollziehbar festgehalten, das dem graduierten Diamanten beigelegt wird. Durch die im Zertifikat festgehaltenen Angaben erhält jeder geschliffene Schmuckdiamant eine Individualität, die im Falle eines Verlustes durch Unachtsamkeit, Diebstahl, etc. bei Wiederauffindung in der Regel seine Wiedererkennung erlaubt. Diese Wiedererkennung wird durch geringste Veränderungen am Schliff und damit auch am Gewicht des Steins in Frage gestellt,

ja unmöglich gemacht, wenn keine anderen typischen Merkmale, etwa die Natur eines charakteristischen Einschlusses vorhanden sind.

Es hat in der Vergangenheit daher nicht an Bestrebungen gefehlt, ein Charakterisierungsverfahren zu entwickeln, das einen geschliffenen Schmuckdiamanten unverwechselbar macht. Unbeeinflusst von äußeren Manipulationen am Stein bleibt die Natur seines durch individuelle Baufehler charakterisierten Kristallgitters. Diese inneren Baufehler können durch Beugung von Röntgenstrahlen am Kristallgitter des Diamanten auf röntgenempfindlichen Filmen oder mit anderen Aufzeichnungstechniken sichtbar gemacht und festgehalten werden. Eine derartige Abbildung von Kristallbaufehlern (Röntgentopogramm) ist gewissermaßen der Fingerabdruck des untersuchten Schmuckdiamanten und als solcher unverwechselbar, da es - ähnlich dem Fingerabdruck bei Menschen - praktisch keine zwei Diamanten gibt, die übereinstimmende Röntgentopogramme liefern. Ein Röntgentopogramm wäre, auf Mikrofilm konserviert, dem Zertifikat beizufügen und eine Kopie davon in einem Archiv zu hinterlegen. Geht der Stein verloren, oder wird er gestohlen, so läßt sich nach Wiedererlangung anhand eines erneut aufgenommenen Röntgentopogramms dessen Identität zweifelsfrei feststellen.

Diese eindeutige und daher unverwechselbare Kennung von rohen, teilweise oder vollständig geschliffenen Schmuckdiamanten mittels Röntgentopographie (Fingerprinting) ist seit vielen Jahren bekannt (vgl. z.B. A. R. Lang et al., Fingerprinting Diamonds by X-ray Topography, Industrial Diamond Review, March 1976, S. 96-103).

In der Praxis des Handels mit hochwertigen geschliffenen Schmuckdiamanten hat es sich bisher nicht durchgesetzt, da die nach dem Stand der Technik angewendete Prozedur für die Erstellung der Röntgentopogramme zu umständlich und zu kompliziert ist. Wegen der hohen kristallographischen Symmetrie des Diamantgitters müssen derzeit für die Grundcharakterisierung

eines Diamanten viele Röntgentopogramme (Muttertopogramme) aufgezeichnet werden, damit mit einem einzigen Kontrolltopogramm (Tochtertopogramm) der Identitätsbeweis zweifelsfrei gelingt.

In der US-Patentschrift Nr. 4.125.770 "Diamond Identification" vom 14. November 1978 und der deutschen Patentschrift DE 25 59 245 C2 "Verfahren zur Identifizierung von Diamanten" vom 26. Mai 1988, die den Stand der Aufnahmetechnik von Röntgentopogrammen zur Identifizierung geschliffener Diamanten in ihrer "Abstammung" von Rohdiamanten beschreiben, wird bei Verwendung von monochromatischer Röntgenstrahlung im "einfachsten Routineverfahren" (simplest routine) von einer Anzahl von zwölf aufzunehmenden Projektions-Topogrammen ausgegangen, wobei die Beugung der Röntgenstrahlen an Netzebenen vom Typ (400) vorgenommen wird, da Würfelflächen die geringste Multiplizität aufweisen. Unter Nutzung der Symmetrie werden nach Einstellung einer derartigen Netzebene nacheinander vier Röntgentopogramme durch Beugung an dazu senkrechten (400) Netzebenen hergestellt, wobei der Kristall zwischen den Aufnahmen jeweils um  $90^\circ$  um die Netzebenennormale gedreht wird. Die genaue Projektionsrichtung bleibt in den beiden Patentschriften offen.

Die Projektionsrichtung ist gegeben durch den Weg des am Kristallgitter gebeugten Röntgenstrahls im Diamanten. Sie wird festgelegt durch die den Strahl reflektierende Netzebenenschar (hkl) in Verbindung mit der azimuthalen Orientierung des Diamantkristalls um die zugehörige Netzebenennormale [hkl]. Dies bedeutet, daß die Lage des durchstrahlten Kristalls in der "Dispersionsebene" (= Ebene von einfallendem und gebeugtem Röntgenstrahl) erst durch Angabe der verwendeten Netzebenenschar (hkl) und zusätzlich einer in der Ebene (hkl) liegenden Kristallrichtung [uvw], welche z.B. senkrecht zur Dispersionsebene liegt, definiert beschrieben wird.

Das Verfahren funktioniert jedoch nur dann zuverlässig, d.h.

Mutter- und Tochterdiagramm werden nur dann praktisch identisch sein, wenn auch diese Projektionsrichtung fest vorgegeben wird, z.B. indem eine  $\langle 110 \rangle$ - oder  $\langle 100 \rangle$ -Richtung senkrecht zur Dispersionsebene gestellt wird. Auf jeden Fall werden zur eindeutigen Identifizierung mit nur einem Tochtertopogramm insgesamt wenigstens 12 Muttertopogramme zwingend benötigt, denn an 3 Netzebenen vom Typ (400) sind in jeweils 4 Projektionsrichtungen Topogramme anzufertigen.

Eigene Versuche haben gezeigt, daß selbst diese Anzahl zur eindeutigen Identifizierung durch 1:1-Vergleich von Mutter- und Tochtertopogramm nicht ausreicht. Zwar bleiben nach dem Friedel'schen Gesetz in einem zentrosymmetrischen Kristallgitter die Beugungsbedingungen für Richtung und Gegenrichtung gleich, es ändern sich aber die Projektionsbedingungen, da das Volumen des Diamanten in Richtung und Gegenrichtung unterschiedlich durchstrahlt wird. Durch unterschiedliche geometrische Überlagerung der Baufehlerkontraste sowie als Folge der Absorption bei größeren Kristallen können sich deshalb derartige Röntgentopogramme voneinander unterscheiden. Man müßte also zum Erhalt eines kompletten Fingerabdrucks des Steins je vier Aufnahmen um jede der drei Würfelachsen in "positiver" Richtung und je vier Aufnahmen um jede der drei Würfelachsen in "negativer" Richtung anfertigen. Dies bedeutet die Aufzeichnung von insgesamt 24 Röntgentopogrammen. Erst dann ist sichergestellt, daß eine einzige Tochteraufnahme genügt, um vollständige Übereinstimmung mit einer der 24 Mutteraufnahmen herbeizuführen.

Die gesamte Prozedur erfordert qualifiziertes Personal, einen hohen Arbeits- und Zeitaufwand und erzeugt prohibitiv hohe Kosten. Dies ist der Grund, warum sich das Fingerprinting von wertvollen, abgeschliffenen Schmuckdiamanten, obwohl höchst wünschenswert zum Schutze des Eigentums, als kommerzielle Teiltechnik der Diamantgraduierung bisher nicht durchsetzen konnte.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, ein Verfahren zu schaffen, mit dem auf vergleichsweise einfache Weise und schnell ein Identifizieren von geschliffenen Diamanten möglich ist.

Zur Lösung der Aufgabe wird vorgeschlagen, daß mit Hilfe eines Goniometers mit fünf Kreisen ( $2\theta$ ,  $\Omega$ ,  $\chi$ ,  $\Sigma$ ,  $\Delta$ ) mit monochromatischer Röntgenstrahlung in einer röntgendiffraktometrischen Justieroutine die Lage der Tafelfacette des Diamanten relativ zum Diamantgitter durch zwei kristallographische Polwinkel ( $\varphi, \varphi$ ) ermittelt wird,

daraus eine Orientierung des Diamanten festgelegt wird,

anschließend bei dieser Orientierung wenigstens eine röntgentopographische Transmissionsaufnahme der internen Defekte des Diamanten mittels monochromatischer Röntgenstrahlung beim Braggschen Winkel angefertigt wird,

und durch Vergleich der ermittelten Polwinkel und Röntgentopogramme mit nach gleicher Prozedur erhaltenen Polwinkeln und Röntgentopogrammen bekannter geschliffener Diamanten die Identität überprüft wird.

Damit steht ein sehr viel einfacheres Verfahren für die röntgendiffraktometrische / röntgentopographische Charakterisierung von geschliffenen Schmuckdiamanten zur Verfügung. Es werden hierbei röntgendiffraktometrisch zwei Winkel ("Polwinkel") am Prüfling mit hoher Genauigkeit ermittelt und anschließend in der Regel ein einziges Muttertopogramm erstellt. Zusammen mit den beiden ermittelten Winkelangaben wird dieses Muttertopogramm dem Diamantgraduierungszertifikat auf Mikrofilm oder einem anderen Datenträger beigelegt, um mit einem einzigen nach identischer Verfahrensvorschrift aufgenommen Tochtertopogramm Identität oder Nichtidentität zu beweisen. Mehr als ein Muttertopogramm wird nur in sehr wenigen genau spezifizierbaren Fällen zwingend erforderlich sein, wiewohl die Anfertigung von maximal vier Muttertopogrammen z.B. bei sehr defektarmen Diamanten zur Sicherheit angeraten ist.

Als Justiervorrichtung wird ein Goniometer mit fünf Kreisen ( $2\theta, \Omega, \chi, \Sigma, \Delta$ ), eine Röntgenquelle und ein Probenhalter sowie ein Detektor verwendet. Mit Hilfe eines vorzugsweise motorisierten Goniometers, das unter Beteiligung einiger oder aller Kreise mit einem speziellen Steuerprogramm eine vollautomatische Orientierung des Prüflings relativ zum aufnehmenden Röntgenstrahl vornimmt, kann die Winkelmessung auf den Kreisen  $\Sigma$  und  $\Delta$  genau durchgeführt und die Anfertigung des Topogramms / der Topogramme zur schattenfreien Defektabbildung in Transmission bis zu einem Asymmetriewinkel von  $40^\circ$  vorgenommen werden.

Das Verfahren kann routinemäßig von technischem Personal durchgeführt werden. Weitgehende Automatisierung sowie erheblich reduzierter Zeit- und Personalaufwand des neuen Verfahrens eröffnen, im Gegensatz zum Stand der Technik, die wirtschaftliche Anwendung der röntgentopographischen Kennung (Fingerprinting) in der Praxis der Zertifizierung hochwertiger geschliffener Diamanten. Es eignet sich zudem aufgrund spezifischer Wachstumsmerkmale zur Identifizierung synthetischer Diamanten, die zukünftig verstärkt in interessanten Größen, Farben und Reinheiten im Diamanthandel auftauchen werden.

Ausgestaltungen der Erfindung sind in den Unteransprüchen aufgeführt.

Nachstehend ist die Erfindung mit ihren wesentlichen Einzelheiten noch näher beschrieben.

Es zeigt:

Fig. 1 eine stereographische Projektion der Kristallrichtungen  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$  und  $\langle 111 \rangle$  eines Diamanten mit eingezeichneten Bereichen "A" und "B" im sphärischen Standarddreieck,



Fig. 2 ein Goniometer mit Lage der Goniometerachsen ( $2\theta, \Omega, X, \Sigma, \Delta$ ) und Orientierung des Diamantkristalls bei Beginn der Suche nach der Referenzrichtung.

Fig. 3 die Lage der Normalen auf die Tafelfacette, gegeben durch die Polwinkel  $\varrho$  und  $\phi$  im Standarddreieck der Stereographischen Projektion.

Fig. 4 eine stereographische Projektion der Lage symmetrisch äquivalenter Reflexe des Typs  $hk0$  auf dem Zonenkreis der Referenzrichtung  $\langle 100 \rangle$  für den Fall, daß der genauere Polwinkel  $\varrho_{\text{mes}, 100}$  größer ist als ein aus der Meßgenauigkeit des Goniometers resultierender Grenzwinkelwert  $\varrho_{\text{lim}}$ , wobei sich die Referenzrichtung im Zentrum der Projektion befindet und der Pol der Tafelfacette gegenüber der Referenzrichtung mit dem Azimut  $\phi_{100}$  um die Poldistanz  $\varrho_{100}$  ausgelenkt ist; die Winkeldistanzen  $\delta$ , zwischen dem Pol der Tafelfacette und symmetrisch äquivalenten ( $hk0$ )-Polen sind deutlich unterscheidbar;

Fig. 5 eine stereographische Projektion der Lage symmetrisch äquivalenter Reflexe des Typs  $hk0$  auf dem Zonenkreis der Referenzrichtung  $\langle 110 \rangle$  für den Fall, daß  $\varrho_{\text{mes}, 110} > \varrho_{\text{lim}}$ , wobei sich die Referenzrichtung im Zentrum der Projektion befindet und der Pol der Tafelfacette gegenüber der Referenzrichtung mit dem Azimut  $\phi_{110}$  um die Poldistanz  $\varrho_{110}$  ausgelenkt ist; die Winkeldistanzen  $\delta$ , zwischen dem Pol der Tafelfacette und symmetrisch äquivalenten ( $hk0$ )-Polen sind deutlich unterscheidbar;

Fig. 6 eine stereographische Projektion der Lage symmetrisch äquivalenter Reflexe des Typs  $hk0$  auf dem Zonenkreis der Referenzrichtung  $\langle 100 \rangle$  für den Fall, daß  $\varrho_{\text{mes}, 100} \leq$

Fig. 6, wobei sich die Referenzrichtung exakt im Zentrum der Projektion befindet und der Pol der Tafelfacette praktisch nicht unterscheidbar am gleichen Ort liegt und

Fig. 7 eine stereographische Projektion der Lage symmetrisch äquivalenter Reflexe des Typs  $hk0$  auf dem Zonenkreis der Referenzrichtung  $\langle 110 \rangle$  für den Fall, daß  $\varphi_{mes, 110} \leq \varphi_{lim}$ , wobei sich die Referenzrichtung exakt im Zentrum der Projektion befindet und der Pol der Tafelfacette praktisch nicht unterscheidbar am gleichen Ort liegt.

Wie die Praxis des Diamantschleifens zeigt, wird der Rohstein in der Regel als Diamantoktaeder angeliefert, der parallel zur Würfelachse  $\{100\}$  in einen großen und einen kleinen Rohdiamanten zersägt wird. Die Sägefläche wird für beide Rohsteinteile die spätere Tafelfacette. Auch wenn der Rohstein als Rhombendodekaeder vorliegt, wird er in der Regel entlang der Würfelachse gesägt. So kommt es, daß bei etwa 80% aller geschliffenen Schmuckdiamanten die Würfelachse und die Normale auf die Tafelfacette annähernd parallel sind und allenfalls einen Winkel  $\varphi_{110} < 10^\circ$  miteinander einschließen. Bei unregelmäßig geformten Rohsteinen oder bei solchen, deren Schliff aufgrund der Materialökonomie anders angelegt ist, können sich zwischen der Würfelachse und der Tafelnormale größere Winkel ergeben. Prinzipiell fällt die Tafelnormale immer in einen Raumwinkel, der von den Richtungen  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 111 \rangle$  und  $\langle 110 \rangle$  begrenzt wird. Dies ist in Figur 1 mit Hilfe der stereographischen Projektion ("Wulff'sches Netz") dargestellt. Wegen der hohen Symmetrie des Diamanten lassen sich alle nachfolgenden Betrachtungen grundsätzlich auf diesen Raumwinkelbereich (sphärisches "Standarddreieck") zurückführen.

In den allermeisten Fällen wird also die Tafelnormale in der Nähe einer  $\langle 100 \rangle$ -Richtung (Würfelachse) ausstechen. Bei der

Projektionstopographie ist die Rundistebene des geschliffenen Diamanten möglichst wenig verzerrt auf dem Röntgentopogramm abzubilden, um den projizierten Querschnitt und damit den Informationsgehalt des Topogramms zu maximieren. Diejenige  $\langle 100 \rangle$ -Richtung, welche den kleinsten Winkel mit der Tafelnormalen bildet, wird deshalb zur kristallographischen Referenzrichtung für die Ermittlung der Polwinkel und die eindeutige Justierung des Kristalls vor der Aufnahme von Topogrammen.

In solchen Fällen, wenn der Winkel zwischen  $\langle 100 \rangle$ -Richtung und Tafelnormale größer als  $27^\circ$  ist, fällt die Tafelnormale nicht mehr in den Bereich "A" der Figur 1 mit der Folge, daß die Rundistebene auf einem Transmissions-Röntgentopogramm sehr stark verzerrt würde. In diesem Fall wird unter den benachbarten  $\langle 110 \rangle$ -Richtungen diejenige mit dem kleinsten Winkel gegenüber der Tafelnormalen zur kristallographischen Referenzrichtung erklärt. Für die nachfolgenden topographische(n) Aufnahme(n) werden nur solche Reflexe benutzt, die auf dem Zonenkreis zur jeweils ausgewählten Referenzrichtung liegen.

Der Verfahrensablauf kann in sechs Schritte unterteilt werden:

1. Der Winkel zwischen der Tafelnormalen und der nächstgelegenen  $\langle 100 \rangle$ - bzw.  $\langle 110 \rangle$ -Richtung wird diffraktometrisch ermittelt, um die kristallographische Referenzrichtung und das weitere Vorgehen festzulegen. Dazu wird der Diamant 4 im Zentrum eines speziellen 5-Kreis-Goniometers 1 (mit den Achsen  $2\theta$ ,  $\Omega$ ,  $\chi$ ,  $\Sigma$  und  $\Delta$ ) in Nullstellung (Figur 2) montiert. In dieser Stellung steht die Tafelfacette des Diamanten parallel zu den Drehkreisen  $\chi$  und  $\Delta$ ,  $\Omega$ -Achse und  $\Sigma$ -Achse sind zueinander parallel und liegen in der Ebene von  $\chi$ - und  $\Delta$ -Drehkreis.

Hier wie im folgenden werden die Achsen des Goniometers

mit großen griechischen Buchstaben bezeichnet ( $2\theta$ ,  $\Omega$ ,  $\chi$ ,  $\Sigma$ , und  $\Delta$ ), während Poldistanz  $\varphi$  und Azimut  $\phi$  der Tafelfacette sowie die Drehbewegungen um die Goniometer-Achsen ( $2\theta$ ,  $\omega$ ,  $\chi$ ,  $\delta$  und  $\phi$ ) mit kleinen griechischen Buchstaben bezeichnet werden.

Die Referenzrichtung wird unter Anwendung einer Suchprozedur mit systematischen Drehbewegungen einiger oder aller Goniometerkreise gefunden, indem in symmetrischer Theta/2-Theta ( $\theta/2\theta$ )-Rückstrahlgeometrie mit monochromatischer Röntgenstrahlung einer Röntgenquelle 2 ein geeigneter Reflex (z.B. 400 oder 220) gesucht und präzise einjustiert wird.

Die Suchprozedur als Justier- und Meßroutine kann manuell oder praktischer vollautomatisch mit Hilfe einer speziellen Software rechnergesteuert durchgeführt werden. Dabei wird das Signal des Röntgendetektors 3 aufgezeichnet, vom Rechner ausgewertet und zur Optimierung der Winkelstellungen benutzt.

In der Endstellung befindet sich entweder  $\langle 100 \rangle$  oder  $\langle 110 \rangle$  als kristallographische Referenzrichtung in Parallelstellung zur X-Achse des Goniometers. Jetzt kann der Winkel  $\varphi$  am Goniometer abgelesen werden. Er entspricht der Auslenkung der Normalen auf die Tafelfacette aus der Referenzrichtung und gibt damit die Poldistanz  $\varphi_{100}$  (bzw.  $\varphi_{110}$ ) der Tafelfacette an (Figur 3).

2. Jetzt wird das Azimut  $\phi$  der Tafelfacetten-Normalen ermittelt. Ausgehend von einer Grundstellung ( $\chi = 0^\circ$ ) werden hierzu Goniometer und Detektorarm auf symmetrische  $\theta/2\theta$ -Transmissionsgeometrie für Reflexe des Typs  $hk0$  eingestellt, deren Pol auf dem Zonenkreis zur Referenzrichtung liegen (z.B. 220). Die Kenntnis der 220-

Reflexposition auf dem Zonenkreis zur Referenzrichtung erlaubt nun die genaue Positionierung der Tafelnormalen im Standarddreieck der stereographischen Projektion. Die Lage der Tafelnormalen läßt sich angeben für den Fall, daß als Referenzrichtung  $\langle 100 \rangle$  benutzt wurde, durch die Polwinkel  $\phi_{100}$  und  $\phi_{100}$ , bzw. falls die Referenzrichtung  $\langle 110 \rangle$  benutzt wurde, durch  $\phi_{110}$  und  $\phi_{110}$ . Zusammengenommen definieren die beiden Winkelangaben  $\phi$  und  $\phi$  die Lage der Tafelnormalen des Prüflings gegenüber der kristallographischen Referenzrichtung in eindeutiger Weise (Figur 3).

3. Die beiden Polwinkel können innerhalb der Goniometertoleranzen jederzeit reproduzierbar eingestellt werden. Sie werden nun dazu benutzt, die Orientierung des Schmuckdiamanten für die röntgentopographische Abbildung und die Anzahl der benötigten Röntgentopogramme festzulegen. Die u.a. fertigungstechnisch bedingten Goniometertoleranzen bestimmen wesentlich die Genauigkeit, mit der die Goniometerwinkel am Röntgendiffraktometer einstellbar sind und damit indirekt die Genauigkeit der Polwinkelablesung. Als Grenzwinkel (hauptsächlich fertigungstechnisch bedingt) ist für die Poldistanz derzeit  $\phi_{lim} = 0,2^\circ$  realistisch, der Grenzwinkel für das Azimut  $\phi_{lim}$  ist zusätzlich abhängig von der Auslenkung  $\phi$ . Für  $\phi = 0,3^\circ$  beträgt  $\phi_{lim}$  derzeit etwa  $13^\circ$ , für  $\phi = 10^\circ$  etwa  $0,2^\circ$ ; unterhalb von  $\phi_{lim}$  macht ein  $\phi_{lim}$  keinen Sinn mehr.  $\phi_{lim}$  wird von der Steuerungssoftware als Funktion von  $\phi_{lim}$  bestimmt. Die Anzahl der minimal aufzunehmenden Muttertopogramme wird von der Abweichung der gemessenen Polwinkel  $\phi_{mes}$  und  $\phi_{mes}$  von ihren Grenzwinkeln bestimmt. Wenn die symmetrisch äquivalenten Reflexe auf dem Zonenkreis der Referenzrichtung durch den Winkel  $\epsilon$  unterscheidbar werden, den die betreffenden Netzebenen mit der Tafelfacette einschließen (Fig. 4 und 5), wird im Regelfall (Wahrscheinlichkeit  $> 95\%$ ) durch die bereits bei niedrigem

apparativem Aufwand recht genaue Polwinkelbestimmung nur ein einziges Röntgentopogramm erforderlich sein. Als Kriterium für die Wahl des für diese eine röntgentopographische Abbildung benutzten Reflexes wird praktischerweise der Winkel  $\epsilon$  zwischen dessen Netzebenenormalen und der Tafelfacettennormalen benutzt. Der automatische Verfahrensablauf kann z.B. so eingerichtet werden, daß unter den symmetrisch äquivalenten 220-Netzebenen auf dem Zonenkreis der Referenzrichtung diejenige Netzebene für die Abbildung ausgewählt wird, deren Winkel mit der Tafelfacette am wenigsten von  $90^\circ$  abweicht (vergleiche Winkel  $\epsilon$  in den Fig. 4 und 5).

Sind die Winkel  $\epsilon$ , die symmetrisch äquivalente Reflexe auf dem Zonenkreis der Referenzrichtung mit der Tafelfacette einschließen, nicht unterscheidbar, fällt also im selten vorkommenden Fall die Tafelnormale innerhalb der Goniometergenauigkeit mit der Referenzrichtung zusammen (Fig. 6, 7), wird die Aufnahme von mehr als einem Muttertopogramm erforderlich, und zwar maximal vier bei Referenzrichtung  $\langle 100 \rangle$  und maximal zwei bei Referenzrichtung  $\langle 110 \rangle$ . Jetzt hat das hier vorgeschlagene Verfahren gegenüber dem Stand der Technik bereits zwei Drittel der Justage-, Meß- und Auswertzeit eingespart und zusätzlich die für die Zertifizierung verwertbare Information erbracht, daß der Winkel  $\phi_{mes}$  zwischen Tafelfacetten-Normalen und Referenzrichtung kleiner als  $\phi_{lim}$  ist.

4. Jetzt werden die erforderlichen Röntgentopogramme erstellt. Die Aufnahme eines Röntgentopogramms kann konventionell mit Hilfe der erprobten Lang-Topographie erfolgen, d. h. unter Verwendung von Punktfokus und oszillierender Translationsbewegung von durchstrahlter Probe und aufzeichnendem Medium (Röntgenfilm, KernspuremulSION,

Multi-Channel-Plate, CCD-Kamera, etc.) relativ zum einfallenden Röntgenstrahl. Alternativ wird mit stetiger Verbesserung der Ortsauflösung von CCD (charged-coupled device) - Bildaufzeichnungssystemen ein modifiziertes Aufzeichnungsverfahren infolge wesentlich unkomplizierterer Handhabung (u.a. Wegfall der naßchemischen Prozessschritte), höherer Geschwindigkeit und einfacherer Archivierungsmöglichkeit vorzuziehen sein. Bei diesem wird der auf die Probe einfallende Röntgenstrahl z. B. durch Bragg-Reflexion an mittlerweile kommerziell erhältlichen Röntgenspiegeln (sog. Göbel-Spiegel bzw. Gutman Optics) in zwei Dimensionen aufgeweitet und parallelisiert und durchstrahlt die Probe in ganzer Breite und Höhe zugleich, d. h. die Translation von Probe und Aufzeichnungsmedium relativ zum Röntgenstrahl kann unterbleiben. Das dem CCD nachgeschaltete elektronische Bildaufzeichnungssystem ist dabei in der Lage, eine eventuell vorliegende lokal inhomogene Intensitätsverteilung im auf die Probe einfallenden Röntgenstrahl durch Differenzbildung oder auf andere geeignete Weise zu kompensieren. Die nachfolgenden Erläuterungen beziehen sich jedoch auf das beim derzeitigen Stand der Technik hochauflösendste Verfahren: aufzeichnendes Medium = Kernspuremulsion. Zur Erstellung der Röntgentopogramme kann der vorgewählte Reflex, z.B. vom Typ 220, rechnergesteuert angefahren und über das Detektorsignal hinsichtlich der Winkelstellungen optimiert werden. Anschließend werden die Justierblenden weggenommen, und es werden Streustrahlblenden eingerichtet. Danach werden bei ausgeschaltetem Röntgenstrahl die Filmkassette plaziert und die (voreingestellte) oszillierende Translationsbewegung eingeschaltet. Die Weite der Oszillation entspricht der größten Breite des Diamanten parallel zur Translationsrichtung. Der Röntgenstrahl wird eingeschaltet, durchstrahlt den Kristall und belichtet den Film im Lichte z.B. eines 220-Reflexes eine definierte Zeit lang

(Zeitschaltuhr).

Falls gemäß den oben angegebenen Kriterien Röntgentopogramme zusätzlicher 220-Reflexe erforderlich sind, wird der Film nach der ersten Belichtung vorübergehend weggenommen. Ein weiterer 220-Reflex wird einjustiert, und es werden Breite und Lage der Streustrahlblenden, falls erforderlich, nachgestellt. Die anschließende Belichtung des Films geschieht nach demselben Verfahren wie die vorangegangene. Praktischerweise wird der noch unentwickelte Film der ersten Aufnahme erneut verwendet, indem dafür Sorge getragen wird, daß die neue Aufnahme sich nicht mit der vorangegangenen überschneidet. Zu diesem Zweck kann die Filmkassette hinter einer Blende um einige Millimeter verschoben werden. Nachdem die erforderlichen Belichtungen auf den Röntgenfilm unter annähernd gleichen Belichtungsbedingungen durchgeführt wurden, wird das Filmstück als Ganzes auf einmal entwickelt und fixiert. Aus Gründen der Einfachheit, insbesondere bei der späteren Identifizierung (Mustererkennung), sollte das Verfahren vorzugsweise nur mit einem Reflextyp (also nur 220 oder nur 400) betrieben werden.

5. Die ermittelten Winkelangaben (Referenzrichtung, Polwinkel, Grenzwinkel) und Röntgentopogramme werden dem Zertifikat der Diamantprüfstelle als Mikrofilm oder in anderer Weise beigelegt und eine Kopie im Archiv verwahrt. Im Idealfall empfiehlt sich die Anlage eines Zentralarchivs.

6. Wird ein mit Polwinkeln und Muttertopogramm(en) zertifizierter verlustig gegangener geschliffener Schmuckdiamant wiedererlangt, werden die Polwinkel gemessen und ein Tochtertopogramm (Kontrollaufnahme) unter Anwendung derselben Justageprozedur aufgenommen. Im Falle der Identität stimmt das Tochtertopogramm mit dem



Muttertopogramm oder einem der Muttertopogramme überein. Die Polwinkel haben nun zweierlei Funktion: Sie sind zum einen Kenngrößen des Prüflings, die nur durch Änderung des Neigungswinkels der Tafel relativ zum Kristallgitter wertlos werden, und dienen zum anderen als Suchparameter zum schnellen Auffinden der (Mutter)-Topogramme, die sich über diese beiden numerisch faßbaren Größen bequem im Archiv lokalisieren lassen. Zu diesem Zweck wird eine Untermenge  $\Theta_{fil}$  und  $\Phi_{fil}$  als Suchparameter des Archivs ausgesiebt, für die gilt:

$$\Theta_{mes} - \Theta_{lim} \leq \Theta_{fil} \leq \Theta_{mes} + \Theta_{lim}$$

$$\Phi_{mes} - \Phi_{lim} \leq \Phi_{fil} \leq \Phi_{mes} + \Phi_{lim}$$

Die Suche kann mittels geeigneter Software auch automatisch erfolgen.

Mit wachsender Anzahl an Muttertopogrammen kann eine Mustererkennung mit Hilfe elektronischer Bildverarbeitung innerhalb der Untermenge mit ähnlichen Polwinkeln  $\Theta$  und  $\Phi$  sinnvoll werden. Die Kontrollaufnahme wird mit dem Muttertopogramm des (Zentral-) Archivs in wesentlichen Details, d.h. der Kontraste infolge interner Kristallbaufehler, übereinstimmen. Eine völlige Übereinstimmung aller Bilddetails, also auch der Kontraste infolge Politurschäden (z.B. Abbildung beschädigter Facettenkanten) wird naturgemäß nur dann gegeben sein, wenn zwischenzeitlich keine mechanischen Veränderungen am Schmuckstein vorgenommen wurden.

Wurde die Orientierung der Tafelfacette relativ zum Kristallgitter des Diamanten verändert (nur möglich durch Umschleifen der Tafel), so ist eine Identifizierung des Kristalls nach dem beschriebenen Verfahren dennoch prinzipiell möglich, wiewohl u.U. aufwendig. Bei geringem Verschleiß der Tafel ( $<2^\circ$ ) kann die Suche im Archiv

(Mustervergleich) auf benachbarte Polwinkel ausgedehnt werden. Stärkeres Umschleifen (z.B. nach Teilen des Schmuckdiamanten) erschwert die Identifizierung dergestalt, daß hier nachträglich bis zu 24 Röntgentopogramme angefertigt werden müßten. Der damit verbundene Aufwand dürfte allerdings nur in Ausnahmefällen in Kauf zu nehmen sein.

Naturgemäß kann ein einziges Röntgentopogramm nur dann eine sichere Identifizierung verbürgen, wenn der Schmuckdiamant hinsichtlich seines Defektgehalts "im Rahmen" liegt. Röntgentopogramme sehr defektarmer Kristalle bieten u.U. außer Wachstumsstreifungen mit geringem Kontrast nur wenige verwertbare Merkmale. Bei defektreichen Kristallen können dagegen an sich verwertbare Kontraste durch Übereinanderprojektion wertlos werden. In diesen Fällen liefern zusätzliche Röntgentopogramme mit anderer Projektionsrichtung eine höhere Sicherheit für die Wiedererkennung. Derartige Röntgentopogramme können mit dem oben vorgestellten Verfahren vollautomatisch erstellt werden. Zu diesem Zweck muß lediglich im Anschluß an die Aufnahme des ersten Topogramms durch Drehung um die bereits einjustierte Referenzrichtung ein weiterer Reflex auf dem zugehörigen Zonenkreis (vgl. die Figuren 6 und 7) für die Abbildung herangezogen werden.

/Ansprüche

**Anspruch**

1. Verfahren zur röntgenographischen Identifizierung von geschliffenen Diamanten, insbesondere zur Bestimmung, ob ein vollständig geschliffener Diamant identisch mit oder verschieden von einem bekannten vollständig geschliffenen Diamanten ist, bei dem mit Hilfe eines Goniometers mit fünf Kreisen ( $2\theta$ ,  $\Omega$ ,  $\chi$ ,  $\Sigma$ ,  $\Delta$ ) mit monochromatischer Röntgenstrahlung in einer röntgendiffraktometrischen Justieroutine die Lage der Tafelfacette des Diamanten relativ zum Diamantgitter durch zwei kristallographische Polwinkel ( $\varphi, \phi$ ) ermittelt wird, daraus eine Orientierung des Diamanten festgelegt wird, anschließend bei dieser Orientierung wenigstens eine röntgentopographische Transmissionsaufnahme der internen Defekte des Diamanten mittels monochromatischer Röntgenstrahlung beim Braggschen Winkel angefertigt wird, und durch Vergleich der ermittelten Polwinkel und Röntgentopogramme mit nach gleicher Prozedur erhaltenen Polwinkeln und Röntgentopogrammen bekannter geschliffener Diamanten die Identität überprüft wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere, insbesondere bis zu vier röntgentopographische Transmissionsaufnahme der internen Defekte des Diamanten angefertigt werden.
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß mittels der Justieroutine die zur Normalen der Tafelfacette des Diamanten nächstliegende  $\langle 100 \rangle$ - oder  $\langle 110 \rangle$ -Richtung als kristallographische Referenzrichtung ermittelt wird und daß die dazugehörigen Polwinkel ( $\varphi, \phi$ ) mit hoher Genauigkeit gemessen werden.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Justieroutine automatisch rechnergesteuert mit einer dafür erstellten Software durchgeführt wird.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß in Kenntnis der Lage der Normalen auf die Tafelfacette in Bezug auf die kristallographische Basis, gegeben durch die gemessenen Polwinkel( $\varrho, \varphi$ ), bei festgelegter Reflexionsstellung und Projektionsrichtung vorzugsweise nur ein einziges Röntgentopogramm (Muttertopogramm) aufgenommen wird.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß in Kenntnis eines gemessenen Polwinkels( $\varrho$ ) zwischen der Normalen auf die Tafelfacette und der ermittelten kristallographischen Referenzrichtung die Anzahl möglicher Reflexionsstellungen und Projektionsrichtungen für die Aufnahme von Röntgentopogrammen auf maximal vier begrenzt wird.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß für ein bestehendes oder neu zu erstellendes Diamant-Zertifikat die aufgenommenen (Mutter-) Röntgentopogramme auf Mikrofilm oder auf anderen Datenträgern aufgenommen werden.
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß zur Identifizierung eines wiedererlangten Diamanten eine diffraktometrische Messung der Polwinkel ( $\varrho, \varphi$ ) und nachfolgend eine einzige röntgentopographische Kontrollaufnahme (Tochtopogramm) vorgenommen wird.
9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß zum schnellen Auffinden von Muttertopogrammen zur Prüfung der Identität mit dem

Fig. 6

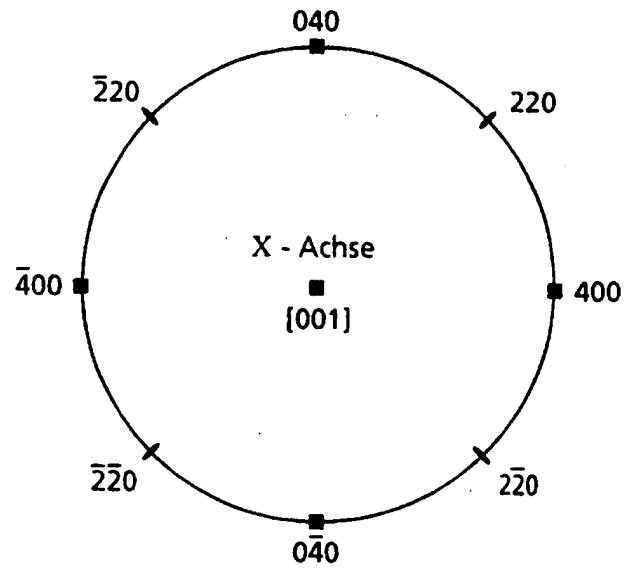


Fig. 7

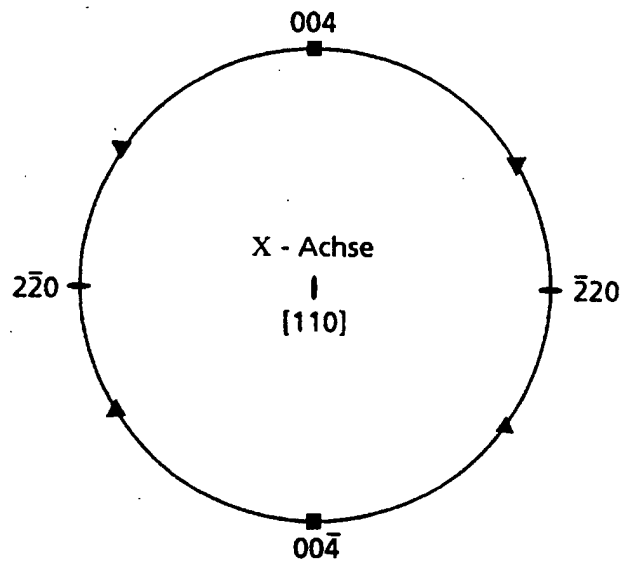


Fig. 3

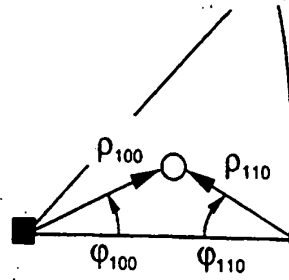


Fig. 4

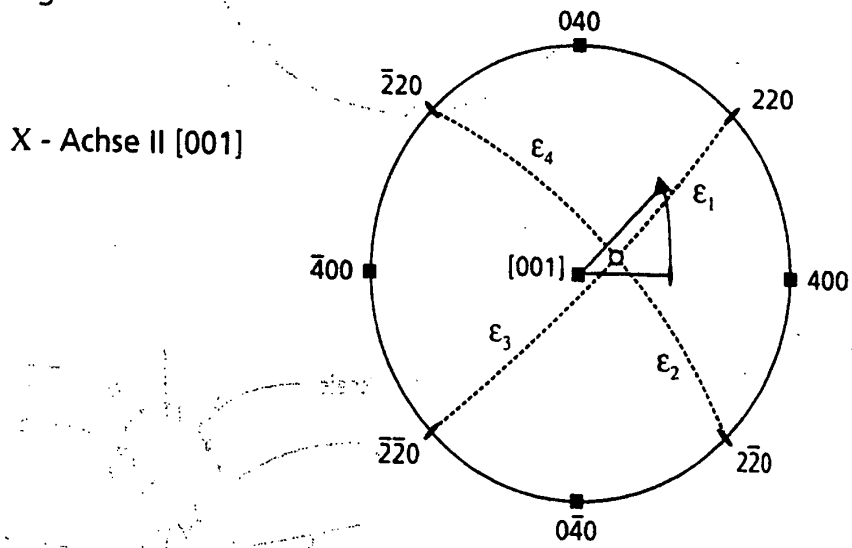


Fig. 5

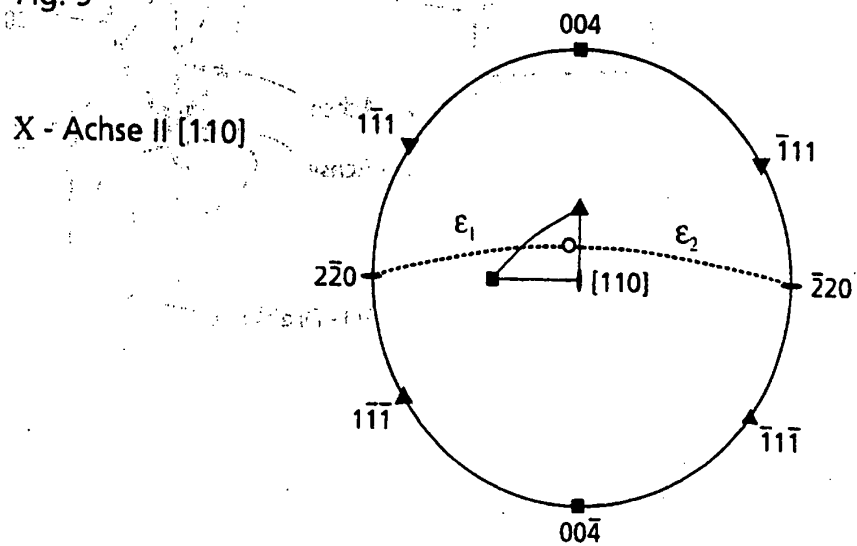


Fig. 1

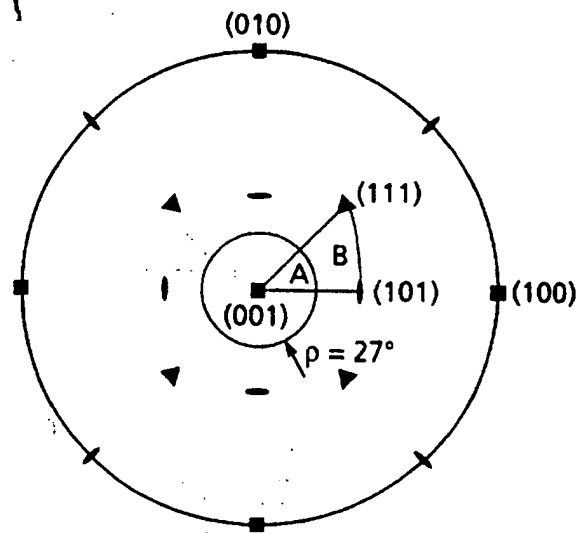
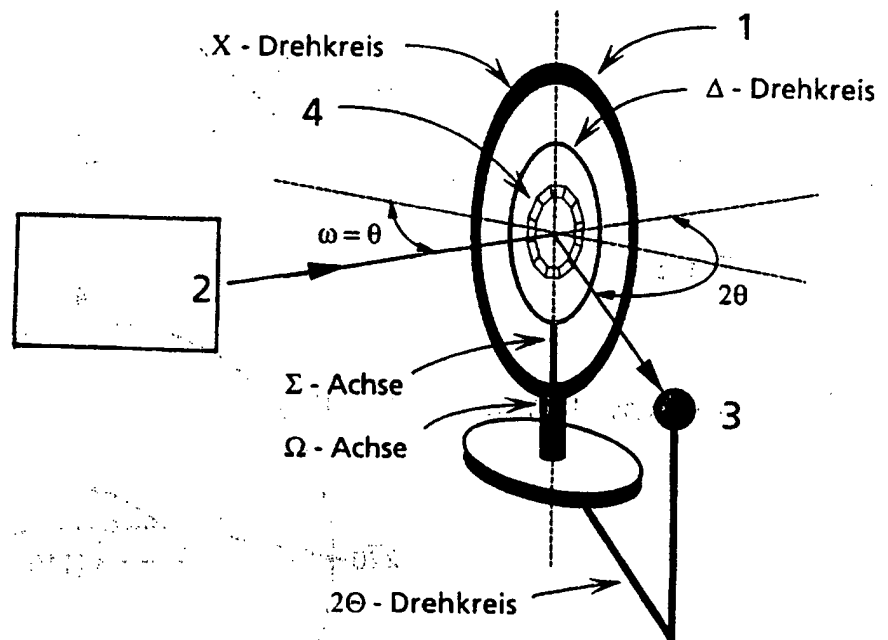


Fig. 2



Tochertopogramm (Kontrollaufnahmen) die beiden Polwinkel( $\rho, \phi$ ) in computerlesbare Form aufbereitet werden.

#### /Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Aufbereitung von Topogrammen, bei dem die Polwinkel ( $\rho, \phi$ ) in computerlesbare Form aufbereitet werden. Das Verfahren umfasst die Schritte: Erfassung der Polwinkel, Umrechnung in computerlesbare Form und Speicherung der Daten.

Das Verfahren ist geeignet für die Verarbeitung von Topogrammen, die in einem bestimmten Format vorliegen. Die Polwinkel werden in einer computerlesbaren Form aufbereitet, die für die weitere Verarbeitung geeignet ist. Die Daten werden in einer computerlesbaren Form gespeichert.

Das Verfahren ist geeignet für die Verarbeitung von Topogrammen, die in einem bestimmten Format vorliegen. Die Polwinkel werden in einer computerlesbaren Form aufbereitet, die für die weitere Verarbeitung geeignet ist. Die Daten werden in einer computerlesbaren Form gespeichert.

Das Verfahren ist geeignet für die Verarbeitung von Topogrammen, die in einem bestimmten Format vorliegen. Die Polwinkel werden in einer computerlesbaren Form aufbereitet, die für die weitere Verarbeitung geeignet ist. Die Daten werden in einer computerlesbaren Form gespeichert.

Das Verfahren ist geeignet für die Verarbeitung von Topogrammen, die in einem bestimmten Format vorliegen. Die Polwinkel werden in einer computerlesbaren Form aufbereitet, die für die weitere Verarbeitung geeignet ist. Die Daten werden in einer computerlesbaren Form gespeichert.